

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

DIALOG(R)File 351:Derwent WPI  
(c) 2002 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.

010720176

WPI Acc No: 1996-217131/199622

XRAM Acc No: C96-068761

Herbicide compsn. useful for removing weeds in paddy field - contg.

pyrimidinyl-oxy-benzoic acid deriv. and

1-(diethyl-carbamoyl)-3-(2,4,6-trimethyl-phenyl-sulphonyl)-1,2,4-triazole

Patent Assignee: CHUGAI PHARM CO LTD (CHUS ); KUMIAI CHEM IND CO LTD (TSUB  
)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
-----------	------	------	-------------	------	------	------

JP 8081314	A	19960326	JP 94216279	A	19940909	199622 B
------------	---	----------	-------------	---	----------	----------

Priority Applications (No Type Date): JP 94216279 A 19940909

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
-----------	------	-----	----	----------	--------------

JP 8081314	A	14	A01N-047/38		
------------	---	----	-------------	--	--

Abstract (Basic): JP 8081314 A

Herbicide compsns. contg. pyrimidinyl-oxy-benzoic acid deriv. of  
formula (I) and

1-(diethylcarbamoyl)-3-(2,4,6-trimethyl-phenyl-sulphonyl)-1,2,4-triazol  
e (DTT) as active ingredients, are new. R = H, alkyl, haloalkyl,  
cycloalkyl-methyl, alkenyl, haloalkenyl or alkoxyalkyl.

Pref., the ratio of (I) to DTT is 1:1-100 by wt..

USE - The herbicide compsns. are partic. useful for removing weeds  
(including Panicum crusgalli) in a paddy field.

ADVANTAGE - The herbicide compsns. can be applied over a wide time  
range (before or after sowing or transplanting). The effect is  
long-lasting and does not harm rice or other crops.

Dwg.0/0

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-81314

(43) 公開日 平成8年(1996)3月26日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
A 0 1 N 47/38	A			
// (A 0 1 N 47/38 43: 54)	C			

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願平6-216279

(22) 出願日 平成6年(1994)9月9日

(71) 出願人 000000169

クミアイ化学工業株式会社  
東京都台東区池之端1丁目4番26号

(71) 出願人 000003311

中外製薬株式会社  
東京都北区浮間5丁目5番1号

(72) 発明者 花井 涼

静岡県小笠郡菊川町青葉台2丁目4番9号

(72) 発明者 小川 安則

静岡県掛川市掛川1138番地の58

(74) 代理人 弁理士 柳原 成

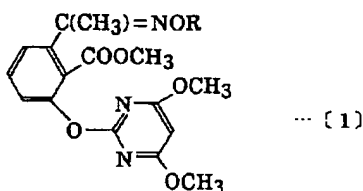
(54) 【発明の名称】 除草剤組成物

(57) 【要約】

【目的】 水田の雑草に対する除草剤であって、高葉齢の雑草、特に高葉齢のノビエに対しても優れた防除効果を示し、しかもその効果が長期間持続する除草剤を得る。

【構成】 下式で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体と、1-(ジエチルカルバモイル)-3-(2,4,6-トリメチルフェニルスルホニル)-1,2,4-トリアゾールとを含有する除草剤組成物。

【化1】



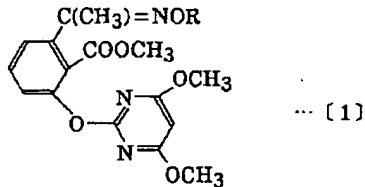
(Rは水素、アルキル基、シクロアルキルメチル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシアルキル基)

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式〔1〕

【化1】



(式中、Rは水素原子、アルキル基、ハロゲン置換アルキル基、シクロアルキルメチル基、アルケニル基、ハロゲン置換アルケニル基、アルキニル基、ハロゲン置換アルキニル基またはアルコキシアルキル基を示す。)で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体と、1-(ジエチルカルバモイル)-3-(2,4,6-トリメチルフェニルスルホニル)-1,2,4-トリアゾールとを有効成分として含有することを特徴とする除草剤組成物。

【請求項2】 ピリミジニルオキシ安息香酸誘導体のRが炭素数1～5のアルキル基である請求項1記載の除草剤組成物。

【請求項3】 ピリミジニルオキシ安息香酸誘導体と1-(ジエチルカルバモイル)-3-(2,4,6-トリメチルフェニルスルホニル)-1,2,4-トリアゾールとの混合比が重量比で1:1～100の範囲である請求項1記載の除草剤組成物。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明はピリミジニルオキシ安息香酸誘導体と1-(ジエチルカルバモイル)-3-(2,4,6-トリメチルフェニルスルホニル)-1,2,4-トリアゾールとを有効成分として含有する除草剤組成物、特に水田等における主要雑草の防除に適した除草剤組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、農作物の栽培に当たり多数の除草剤が使用され、農作業の省力化や農作物の生産性向上に寄与してきた。水稻栽培においても、ベンスルフロメチル(日本植物防疫協会発行農薬要覧1993年、463頁)、ダイムロン(同460頁)、ピラゾレート(同463頁)、ブタクロール(同464頁)等の除草剤が使用されている。

【0003】 一方、従来、数多くのピリミジニルオキシ安息香酸誘導体がノビエ等に対して除草効果を示すことが知られている(例えば、特開昭62-174059号公報、特開昭63-115870号公報および特開平4-134073号公報)。また除草剤として、1-(ジエチルカルバモイル)-3-(2,4,6-トリメチルフェニルスルホニル)-1,2,4-トリアゾール(特開平2-1481号公報、以下D T Tと略記する場合が

2

ある)が知られている。しかし、上記公報には、ピリミジニルオキシ安息香酸とD T Tとを組合せて使用することは示されていない。その他にも除草剤として、N-[ (4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル) アミノカルボニル ] -1-メチル-4-(2-メチル-2H-テトラゾール-5-イル)-1H-ピラゾール-5-スルホンアミド(特開昭63-185906号公報、以下アジムスルフロと記す。)等が知られている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 しかるに現在使用されている水田用除草剤は、タイヌビエに代表されるノビエ類の防除において、効果の持続性や高葉齢のものに対する効果が不十分である。このため除草効果切れによる後続発生雑草や、生育の進んだ雑草の枯れ残りが問題となっている。また生育段階の異なる多種類の雑草をできるだけ少ない施用量と回数で防除することが要望されている。

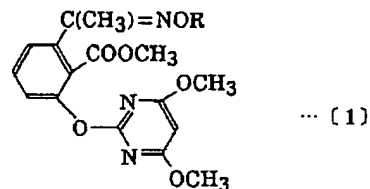
【0005】 本発明の目的は、水田における主要雑草に対する除草剤組成物であって、発芽前または発芽直後ないし若葉期の雑草はもちろん、葉齢の進んだ高葉期の雑草、特にノビエに対しても低葉量で優れた防除効果を示し、しかも使用時期として播種または移植の前後の広範囲にわたる時期に施用して優れた防除効果を得ることができ、かつその効果は長期間にわたって持続するとともに、水稻その他の作物に対して高い安全性を有する除草剤組成物を提供することである。

【0006】

【課題を解決するための手段】 本発明は次の除草剤組成物である。

(1) 一般式〔1〕

【化2】



(式中、Rは水素原子、アルキル基、ハロゲン置換アルキル基、シクロアルキルメチル基、アルケニル基、ハロゲン置換アルケニル基、アルキニル基、ハロゲン置換アルキニル基またはアルコキシアルキル基を示す。)で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体と、1-(ジエチルカルバモイル)-3-(2,4,6-トリメチルフェニルスルホニル)-1,2,4-トリアゾールとを有効成分として含有することを特徴とする除草剤組成物。

(2) ピリミジニルオキシ安息香酸誘導体のRが炭素数1～5のアルキル基である前記(1)記載の除草剤組成物。

(3) ピリミジニルオキシ安息香酸誘導体と1-(ジ

3


エチルカルバモイル) - 3 - (2, 4, 6-トリメチルフェニルスルホニル) - 1, 2, 4-トリアゾールとの混合比が重量比で1:1~100の範囲である前記(1)記載の除草剤組成物。

【0007】一般式〔1〕においてRで示されるアルキル基としてはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基等の炭素数1~8のアルキル基；ハロゲン置換アルキル基としては前記アルキル基が塩素原子、フッ素原子等で置換されたハロゲン置換アルキル基；シクロアルキルメチル基としてはシクロプロピルメチル基等の炭素数4~7のシクロアルキルメチル基；アルケニル基としてはプロペニル基、ブテニル基、3-メチルブテ-2-ニル基、2-メチルプロペ-2-ニル基等の炭素数2~8のアルケニル基；ハロゲン置換アルケニル基としては前記アルケニル基が塩素原子、臭素原子等で置換されたハロゲン置換アルケニル基；アルキニル基としてはプロピニル基、ブチニル基等の炭素数2~8のアルキニル基；ハロゲン置換アルキニル基としては前記アルキニル基が塩素原子等で置換されたハロゲン置換アルキニル基；アルコキシアルキル基としてはエトキシメチル基等の炭素数の合計が2~8のアルコキシアルキル基などが挙げられる。これらの中では炭素数1~5のアルキル基が好ましい。

【0008】一般式〔1〕で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体の代表的化合物例を表1に示す。なお、化合物番号は以下の記載において参照される。

【表1】

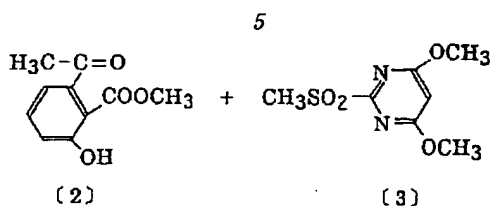
表 1

化合物番号	R
1	H
2	CH <sub>3</sub> (Z)
3	CH <sub>3</sub> (E)
4	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
5	iso-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
6	C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
7	sec-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
8	CH <sub>2</sub> - 
9	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>
10	CH <sub>2</sub> CH=CHCH <sub>3</sub>
11	CH <sub>2</sub> CH=C(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
12	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>
13	CH <sub>2</sub> C(CH <sub>3</sub> )=CH <sub>2</sub>
14	CH <sub>2</sub> C≡CH
15	CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
16	(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> F
17	(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> Cl
18	CH <sub>2</sub> CH=CHCl
19	CH <sub>2</sub> CH=CCl <sub>2</sub>
20	CH <sub>2</sub> CCl=CH <sub>2</sub>
21	CH <sub>2</sub> CBr=CH <sub>2</sub>
22	CH <sub>2</sub> CCl=CHCl
23	CH <sub>2</sub> C≡CCH <sub>2</sub> Cl
24	CH <sub>2</sub> OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>

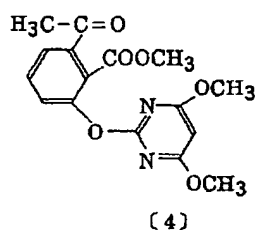
【0009】一般式〔1〕で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体それ自体は公知の化合物であり、例えば特開平4-134073号公報に記載された方法により製造することができる。具体的には、例えば次のような反応式〔A〕で示される反応により製造することができる。なお式中、Rは前記と同じものを示す。

【0010】

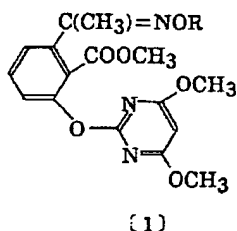
【化3】



塩基  
↓  
溶媒



塩基, 溶媒  
↓  
RO-NH<sub>2</sub>



… (A)

【0011】一般式(4)で表わされる中間体は、一般式(2)で表わされる化合物および一般式(3)で表わされる化合物を、塩基の存在下、不活性溶媒中で0℃ないし溶媒の沸点までの温度で反応させることにより得ることができる。塩基としては、例えばアルカリ金属またはアルカリ土類金属、特にナトリウム、カリウム、マグネシウムまたはカルシウムの炭酸塩、炭酸水素塩、酢酸

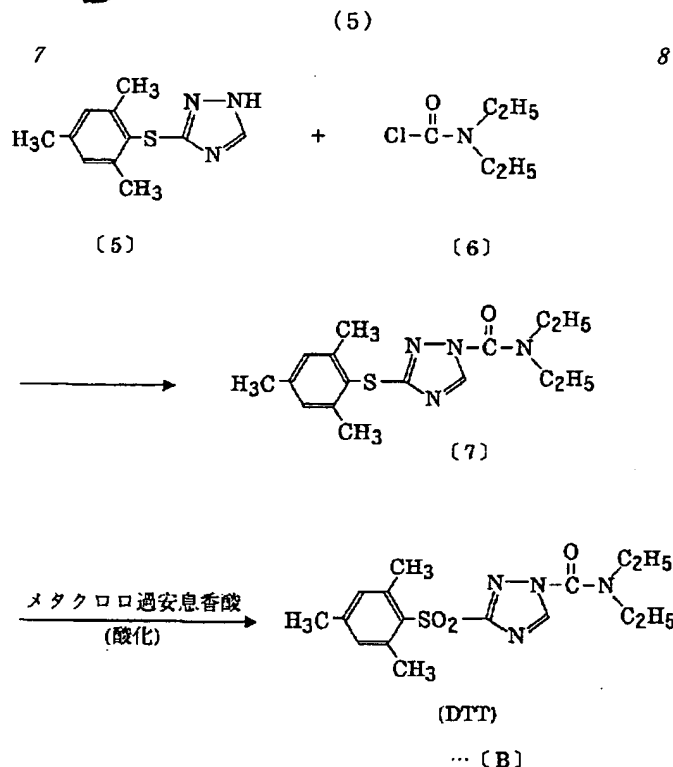
塩、アルコール、水酸化物、水素化物または酸化物等が使用できる。その他にも、有機塩基、例えばピリジンまたはトリエチルアミン等の3級アミンを使用することもできる。また、溶媒としては、例えばトルエン、ベンゼン、キシレン等の炭化水素系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン化炭化水素系溶媒；メタノール、エタノール等のアルコール系溶媒；エチルエーテル、イソプロピルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン等のエーテル系溶媒；N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシド等の非プロトン系極性溶媒；酢酸エチル等のエステル系溶媒などが使用できる。

【0012】一般式(4)で表わされる中間体から一般式(1)で表わされる目的物を得るには、中間体とRO-NH<sub>2</sub>で表わされる化合物とを、塩基の存在下、不活性溶媒中で0℃ないし溶媒の沸点の温度範囲で30分～12時間反応させることによって製造することができる。このとき使用する塩基および溶媒としては、上記と同じものが使用できる。

20 【0013】本発明において、もう一方の有効成分になる1-(ジエチルカルバモイル)-3-(2,4,6-トリメチルフェニルスルホニル)-1,2,4-トリアゾール(DTT)それ自体は公知の化合物であり、例えば特公平5-73745号公報に記載されている方法により製造することができる。具体的には、例えば次のような反応式(B)で示される反応により製造することができる。

【0014】

【化4】



【0015】すなわち、化合物〔5〕をピリジンに溶かし、これに化合物〔6〕を加えて加熱撹拌した後、ピリジンを留去して残査を得る。この残査をクロロホルム抽出して化合物〔7〕を含む抽出液を得、次いでその中にメタクロロ過安息香酸を加えて室温で撹拌後、溶媒を留去してDTTの粗結晶を得る。さらにこれを酢酸エチルで再結晶して精製したDTTを得る。

【0016】本発明の除草剤組成物は、一般式〔1〕で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体の一種類を、DTTと組合せてもよいし、二種類以上のものをDTTと組合せてもよい。前記表1のピリミジニルオキシ安息香酸誘導体とDTTとの組合せの中では、化合物2または化合物9とDTTとの組合せが好ましく、この組合せの場合に特に優れた除草効果が得られる。

【0017】本発明の除草剤組成物の有効成分の混合割合は、広い範囲で適宜選択でき、優れた除草効果を期待できるが、通常重量比で、一般式〔1〕で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体1部に対してDTTを1～100部、好ましくは2～60部、より好ましくは3～20部の割合で配合する。

【0018】本発明の除草剤組成物の施用量は広い範囲で選択でき、通常、有効成分として5g～5kg/haの薬量で使用することができ、10g～2kg/haの薬量での使用が好ましく、特に100g～700g/haでの使用が好ましい。一般式〔1〕で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体およびDTTは、各々単独の施用で除草剤としてすでに用いられているが、本発明では両成分を組合せることにより相乗効果が得られ、単独施用では防除困難な条件下のノビエに対しても、上

記低薬量においてノビエを防除することができる。

【0019】本発明の除草剤組成物は前記有効成分に担体、界面活性剤、分散剤または補助剤等を配合して、常法により、例えば粒剤、水和剤、乳剤、微粒剤、粉剤またはフロアブル等に製剤して施用することが好ましい。ここで好適な担体としては、例えばタルク、ペントナイト、クレー、カオリン、珪藻土、炭酸カルシウム、ホワイトカーボン、パーミキュライト、消石灰、珪砂、硫酸、尿素等の固体担体；イソプロピルアルコール、キシレン、シクロヘキサノン、メチルナフタレン、ジメチルスルホキシド、脂肪酸エステル、植物油、鉱物油、動物油、水等の液体担体などが挙げられる。

【0020】上記界面活性剤および分散剤としては、例えばジナフチルメタンジスルホン酸塩、ポリオキシアルキレンアリールフェニルエーテル、ポリオキシアルキレンスチリルフェニルエーテル、アルコール硫酸、アルコール硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンヒマシ油、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェート、アルキルベンゼンスルホン酸塩、ナフタレンスルホネートホルマリン縮合物、リグニンスルホン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテルスルホネート等が挙げられる。補助剤としては、例えばカルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、アラビアゴム、デキストリン、縮合リン酸塩等が挙げられる。本発明の除草剤組成物を含有する製剤は適当な濃度に希釈して散布

9

することもできるし、直接施用することもできる。

【0021】本発明の除草剤組成物は前記2成分のほか、有効成分として他の殺虫剤、殺菌剤、生長調節剤または肥料等を含んでもよい。また他の除草剤、例えばスルホニルウレア、ピラゾール、ジフェニルエーテル、トリアジン、ウレア、アミド、カーバメート系等の除草剤の1種または2種以上と組合わせて使用することもできる。特に次の除草剤と組合わせて用いた場合に有用である。

【0022】ベンスルフロンメチル、アジメスルフロン、エチル 5-(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルバモイルスルファモイル-1-メチルピラゾール-4-カルボキシレート、N-(2-クロロイミダゾ[1, 2-a]ピリジン-3-イルスルホニル)-N'-(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)ウレア、4-(2, 4-ジクロロベンゾイル)-1, 3-ジメチルピラゾール-5-イルパラトルエンスルホネート、3-イソプロピル-2, 1, 3-ベンゾチアジアジノン-(4)-2, 2-ジオキソド、ダイムロン等。

【0023】本発明の除草剤組成物は、ノビエ、タマガヤツリ、コナギ、ホタルイ、ヘラオモダカ、ミズガヤツリ、アゼナ等の水田等における主要雑草に防除効果を示す。特に、一般式〔1〕で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体またはDTTの単独施用では防除困難な条件下のノビエに対して、低葉量で優れた除草効果を示す。また本発明の除草剤組成物は、水稻移植後から葉齢の進んだ時期、例えばノビエの5葉期程度にかけての広い範囲で使用時期を選択することができ、そして除草効果が長期間持続するので、収穫量に特に影響を及ぼす後続発生雑草をも防除することができ、しかも生育の進んだ雑草の枯れ残りが生じないほか、生育段階の異なる種類の雑草を少ない施用量と回数により防除することができる。一方、水稻その他の作物に対する安全性は高く、薬害を与えることがない。

【0024】

【実施例】次に本発明の除草剤組成物の実施例を挙げるが、有効成分およびその他の成分ならびにそれらの配合割合は本発明の主旨を損なわない範囲で任意に変更するものである。なお、各例中の部はすべて重量部である。

#### 実施例1 粒剤

化合物2 0.1部、  
DTT 0.7部、  
ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 64.2部、  
トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

10

#### 【0025】実施例2 粒剤

化合物1 0.2部、  
DTT 0.7部、  
ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 64.1部、  
トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

#### 【0026】実施例3 粒剤

化合物3 0.2部、  
DTT 1.05部、  
ベントナイト 20部、タルク 73.75部、カルボキシメチルセルロース 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水18部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

#### 【0027】実施例4 粒剤

化合物4 0.3部、  
DTT 2.1部、  
ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 62.6部、  
トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けして粒剤とした。

#### 【0028】実施例5 水和剤

化合物2 1部、  
DTT 10部、  
クレー 80部、ホホワイトカーボン 5部、ジナフチルメタンジスルホン酸ナトリウム 2部、およびリグニンスルホン酸ナトリウム 2部を均一に混合粉碎して水和剤とした。

#### 【0029】実施例6 フロアブル

化合物1 0.6部、  
DTT 6部、  
ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム 2部、ポリオキシエチレン化ヒマシ油 12部、ポリオキシアルキレンスチリルフェニルエーテル 3部、ホホワイトカーボン 2部、およびナタネ白紋油 74.4部を均一に混合粉碎してフロアブルとした。

#### 【0030】実施例7 乳剤

化合物1 0.5部、  
DTT 5部、  
ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル 7部、  
ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム 3部、ジメチ





(7)

特開平8-81314

11

ルスルホキシド 30部、およびキシレン 54.5部を混合溶解して乳剤とした。

## 【0031】実施例8 粒剤

化合物1 0.1部、  
DTT 0.7部、  
ベンスルフロンメチル 0.17部、  
ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 64.03部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

## 【0032】実施例9 粒剤

化合物1 0.1部、  
DTT 0.7部、  
ベンスルフロンメチル 0.25部、  
ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 63.95部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

## 【0033】実施例10 粒剤

化合物1 0.2部、  
DTT 0.7部、  
ベンスルフロンメチル 0.17部、  
ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 63.93部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

## 【0034】実施例11 粒剤

化合物1 0.2部、  
DTT 0.7部、  
ベンスルフロンメチル 0.25部、  
ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 63.85部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

## 【0035】実施例12 粒剤

化合物1 0.6部、  
DTT 2.1部、  
ベンスルフロンメチル 0.51部、

12

ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 60.79部、トリポリリン酸ナトリウム 3部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けして粒剤とした。

## 【0036】実施例13 粒剤

化合物1 0.6部、  
DTT 2.1部、  
ベンスルフロンメチル 0.75部、  
ベントナイト 30部、炭酸カルシウム 61.55部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けして粒剤とした。

## 【0037】実施例14 粒剤

化合物3 0.1部、  
DTT 0.7部、  
アジメスルフロン 0.03部、  
ベントナイト 20部、タルク 74.17部、カルボキシメチルセルロース2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水18部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

## 【0038】実施例15 粒剤

化合物3 0.2部、  
DTT 0.7部、  
アジメスルフロン 0.03部、  
ベントナイト 20部、タルク 74.07部、カルボキシメチルセルロース2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水18部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けして粒剤とした。

## 【0039】実施例16 粒剤

化合物3 0.6部、  
DTT 2.1部、  
アジメスルフロン 0.09部、  
ベントナイト 20部、タルク 72.21部、カルボキシメチルセルロース2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水18部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分

13

けして粒剤とした。

【0040】実施例17 粒剤

化合物1 0.1部、  
D T T 0.7部、  
ベンスルフロンメチル 0.1部、  
アジムスルフロン 0.02部、  
ペントナイト 30部、炭酸カルシウム 64.08部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、14~32メッシュをふるい分けて粒剤とした。

【0041】実施例18 粒剤

化合物1 0.2部、  
D T T 0.7部、  
ベンスルフロンメチル 0.1部、  
アジムスルフロン 0.02部、  
ペントナイト 30部、炭酸カルシウム 63.98部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、0.8mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けて粒剤とした。

【0042】実施例19 粒剤

化合物1 0.6部、  
D T T 2.1部、  
ベンスルフロンメチル 0.3部、  
アジムスルフロン 0.06部、  
ペントナイト 30部、炭酸カルシウム 61.94部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けて粒剤とした。

【0043】実施例20 粒剤

化合物1 0.6部、  
D T T 2.1部、  
ベンスルフロンメチル 0.51部、  
ダイムロン 4.5部、  
ペントナイト 30部、炭酸カルシウム 57.29部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けて粒剤とした。

【0044】実施例21 粒剤

14

化合物1 0.6部、  
D T T 2.1部、  
ベンスルフロンメチル 0.75部、  
ダイムロン 4.5部、  
ペントナイト 30部、炭酸カルシウム 57.05部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けて粒剤とした。

【0045】実施例22 粒剤

化合物3 0.6部、  
D T T 2.1部、  
アジムスルフロン 0.09部、  
ダイムロン 4.5部、  
ペントナイト 20部、タルク 67.71部、カルボキシメチルセルロース2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水18部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けて粒剤とした。

【0046】実施例23 粒剤

化合物1 0.6部、  
D T T 2.1部、  
ベンスルフロンメチル 0.3部、  
アジムスルフロン 0.06部、  
ダイムロン 4.5部、  
ペントナイト 30部、炭酸カルシウム 57.44部、トリポリリン酸ナトリウム 2部、リグニンスルホン酸ナトリウム 2部、およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部を均一に混合粉碎した。この混合物100部に対して水15部を加えて練合し、1.2mmの押出式造粒機で造粒、乾燥後、12~24メッシュをふるい分けて粒剤とした。

【0047】次に、本発明の除草剤組成物の奏する効果を試験例を挙げて説明する。

試験例1 圃場試験(その1)

6月初旬に慣行法に準じて入水、施肥、代掻した後、田植を行った水田を、エスロンシート(信越化学工業(株)製:商品名「アゼナミ」)を用いて1区画3m<sup>2</sup>(1.5m×2m)になるように区取り、タイヌピエの種子を播種した。田植後5日後、12日後および16日後に、実施例1および2に準じて調製した粒剤の所定量を均一に処理した。その後、通常の管理を行い、薬剤処理45日後に表2の基準に従ってタイヌピエに対する除草効果および水稻に対する薬害を調査した。なお、市販比較薬剤として、ピラゾレート6重量%およびブタクロール2.5重量%を含有する粒剤を用いた。試験結果を

表3に示す。

【0048】

\*【表2】

\*

表 2

指 数	除草効果または薬害の基準
5. 0	100%抑制の除草効果または薬害
4. 5	90%以上100%未満抑制の除草効果または薬害
4. 0	80%以上 90%未満抑制の除草効果または薬害
3. 5	70%以上 80%未満抑制の除草効果または薬害
3. 0	60%以上 70%未満抑制の除草効果または薬害
2. 5	50%以上 60%未満抑制の除草効果または薬害
2. 0	40%以上 50%未満抑制の除草効果または薬害
1. 5	30%以上 40%未満抑制の除草効果または薬害
1. 0	20%以上 30%未満抑制の除草効果または薬害
0. 5	10%以上 20%未満抑制の除草効果または薬害
0	除草効果または薬害なし

【0049】

【表3】

17  
表 3

18

供試薬剤	薬 量 (g al/ha)	除草効果			薬 害		
		処理日			処理日		
		5	12	16	5	12	16
化合物2+DTT	30 + 210	5	5	4.5	0	0	0
	60 + 210	5	5	4.5	0.5	0	0
化合物9+DTT	30 + 210	5	5	4.0	0.5	0	0
	60 + 210	5	5	4.5	1	0	0
化合物2	30	3.5	3	2	0	0	0
	60	4.5	4	3	0	0	0
化合物9	30	4	3	1.5	0	0	0
	60	4.5	4	2	0	0	0
DTT	210	4.5	3	1	0	0	0

【0050】表3の結果から明らかなように、本発明の除草剤組成物はタイヌビエに対して優れた除草活性を示した。なお、無処理区ではタイヌビエの他にコナギ、ホタルイ、アゼナ等が発生した。

【0051】試験例2 圃場試験（その2）

6月初旬に慣行法に準じて入水、施肥、代掻した後、田植を行った水田を、エスロンシート（信越化学工業（株）：商品名「アゼナミ」）を用いて1区画3m<sup>2</sup>（1.5m×2m）になるように区切り、タイヌビエ

の種子を播種した。田植後5日後、12日後および16日後に、実施例8、9、10、11、14、15、17、18、20、21、22および23に準じて調製した粒剤の所定量を均一に処理した。その後、通常の管理を行い、薬剤処理45日後に試験例1と同様にして除草効果および薬害を調査した。試験結果を表4～表6に示す。

【0052】

【表4】

供試薬剤	薬 量 (g ai/ha)	除草効果			薬 害		
		処理日			処理日		
		5	12	16	5	12	16
化合物2+DTT+ベ ンスルフロンメチル	30+210+51	5	5	4.5	0.5	0	0
	30+210+75	5	5	5	1	0	0
	60+210+51	5	5	5	1	0	0
	60+210+75	5	5	5	1	0	0
化合物2+DTT+ア ジムスルフロン	30+210+9	5	5	5	1	0.5	0
	60+210+9	5	5	5	1.5	1	0
化合物2+DTT+ベ ンスルフロンメチル+ アジムスルフロン	30+210+30 +6	5	5	5	0.5	0.5	0
	60+210+30 +6	5	5	5	1	0.5	0

【0053】

【表5】

表 5

供試薬剤	薬量 (g ai/ha)	除草効果			薬害		
		処理日			処理日		
		5	12	16	5	12	16
化合物2+DTT+ベン スルフロンメチル+ ダイムロン	60+210+51 +450	5	5	5	0.5	0	0
	60+210+75 +450	5	5	5	0.5	0	0
化合物2+DTT+ア ジムスルフロン+ダイ ムロン	60+210+9 +450	5	5	5	0.5	0.5	0
化合物2+DTT+ベン スルフロンメチル+ アジムスルフロン+ダイ ムロン	60+210+30 +6+450	5	5	5	0.5	0	0

【0054】

\* \* 【表6】

表 6

供試薬剤	薬量 (g ai/ha)	除草効果			薬害		
		処理日			処理日		
		5	12	16	5	12	16
ベンスルフロンメチル	30	1.5	0.5	0	0.5	0	0
	51	2	1	0	0.5	0	0
	75	2.5	1	0	0.5	0	0
アジムスルフロン	6	2.5	1	1	1	0.5	0
	9	3.5	2	1.5	1	0.5	0
ベンスルフロンメチル +アジムスルフロン	30+6	2.5	1.5	1	0.5	0.5	0
市販比較剤 (ピラゾレ ート+ブタクロール)	1800+750	4.5	2	0	0	0	0

【0055】試験例3 雑草発芽後処理試験  
 1/5000アールのワグネルポットに水田土壌を充填 50 し、入水、施肥、代掻き後、タイヌビエの種子を播種  
 し、土壌表層が乾かない程度に給水しながら温室内で生

育させた。播種翌日（発芽前）、6日後（1葉期）、10日後（2葉期）、15日後（3葉期）、18日後（4葉期）および22日後（5葉期）に各々の葉齢のタイヌビエが1ポット当り5本になるよう間引き（播種翌日は除く）、水深を4cmにしたのち、実施例1および2に\*

\*準じて調製した粒剤の所定量を処理した。薬剤処理1か月後に表2の基準に従って除草効果を調査した。試験結果を表7に示す。

【0056】

【表7】

表 7

供試薬剤	薬量 (g ai/ha)	除 草 効 果					
		播種から処理までの日数					
		翌日	6日後	10日後	15日後	18日後	22日後
化合物2 +DTT	20+140	5	5	5	5	4	2
	40+140	5	5	5	5	4.5	3.5
化合物9 +DTT	20+140	5	5	5	4.5	3.5	1.5
	40+140	5	5	5	5	4	3
化合物2	20	5	5	4.5	3.5	1.5	0.5
	40	5	5	4.5	4.5	3.5	1.5
化合物9	20	5	5	4	3	1.5	0
	40	5	5	4.5	4	3	1
DTT	140	5	5	4	1	0	0

【0057】試験例4 雑草発芽前処理試験  
1/10000アールのプラスチックポットに水田土壌を充填し、入水、施肥、代掻き後に湛水状態とし屋外に置いた。翌日、実施例3に準じて調製した粒剤の所定量を処理した。処理当日、15日後、30日後、45日

後、60日後および75日後にタイヌビエを表層に播種し、各々播種後1か月後に表2の基準に従って除草効果を調査した。試験結果を表8に示す。

【0058】

【表8】

表 8

供試薬剤	薬 量 (g al/ha)	除 草 効 果					
		処理まから播種での日数					
		翌日	15日後	30日後	45日後	60日後	75日後
化合物2 +D T T	40+210	5	5	5	4.5	3	0.5
化合物9 +D T T	40+210	5	5	5	4.5	3	1
化合物2	40	5	4.5	3	0.5	0.5	0
化合物9	40	5	4.5	4	0.5	0.5	0
D T T	210	5	5	4.5	3	0	0

## 【0059】

【発明の効果】本発明の除草剤組成物は、一般式〔1〕で表わされるピリミジニルオキシ安息香酸誘導体と1-(ジエチルカルバモイル)-3-(2, 4, 6-トリメチルフェニルスルホニル)-1, 2, 4-トリアゾールとを有効成分として含有しているので、これらの相乗効果により、発芽前または発芽後ないし若葉期の雑草はも

ちろん、高葉期の雑草、特にノビエに対しても低薬量で優れた防除効果を示し、しかも使用時期として播種または移植の前後の広範囲にわたる時期に施用して優れた防除効果を得ることができ、かつその効果は長期間にわたって持続するとともに、水稻その他の作物に対しては高い安全性を有している。